

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5227792号
(P5227792)

(45) 発行日 平成25年7月3日(2013.7.3)

(24) 登録日 平成25年3月22日(2013.3.22)

(51) Int. Cl.		F I	
HO 1 M	4/86 (2006.01)	HO 1 M	4/86 M
HO 1 M	4/96 (2006.01)	HO 1 M	4/96 M
HO 1 M	4/88 (2006.01)	HO 1 M	4/88 C
		HO 1 M	4/88 Z
		HO 1 M	4/86 B

請求項の数 20 (全 9 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2008-510426 (P2008-510426)	(73) 特許権者	501479868
(86) (22) 出願日	平成18年3月31日 (2006.3.31)		カール・フロイデンベルク・カーゲー
(65) 公表番号	特表2008-541362 (P2008-541362A)		Carl Freudenberg KG
(43) 公表日	平成20年11月20日 (2008.11.20)		ドイツ連邦共和国デー69469ヴァインハイム、ヘーネルヴェーク2-4
(86) 国際出願番号	PCT/EP2006/002927		Hoehnerweg 2-4, D-69469 Weinheim, Germany
(87) 国際公開番号	W02006/119825	(74) 代理人	100087642
(87) 国際公開日	平成18年11月16日 (2006.11.16)		弁理士 古谷 聡
審査請求日	平成19年12月20日 (2007.12.20)	(74) 代理人	100076680
(31) 優先権主張番号	102005022484.9		弁理士 溝部 孝彦
(32) 優先日	平成17年5月11日 (2005.5.11)	(74) 代理人	100121061
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		弁理士 西山 清春

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ガス拡散層、ならびにその装置およびその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

相互に結合した少なくとも2つの機能的な領域(2a, 2b)を含み、第1の領域(2a)が多孔質構造を有し、第2の領域(2b)が安定化ゾーンとして、前記第1の領域(2a)を被覆する被覆体として形成されており、前記第1の領域(2a)が前記第2の領域(2b)より低い引張係数を有し、全体で1GPa未満の曲げ弾性率を有し、前記被覆体が坪量1~100g/m²を有するガス拡散層(2)であって、前記安定化ゾーンが、前記ガス拡散層が圧縮された際に当該ガス拡散層の形状を安定化させる、ガス拡散層。

【請求項 2】

前記第1の領域(2a)が前記第2の領域(2b)より高い圧縮率を有する、請求項1に記載のガス拡散層。

【請求項 3】

前記第1の領域(2a)の弾性が前記第2の領域(2b)より高い、請求項1または2に記載のガス拡散層。

【請求項 4】

前記領域(2a, 2b)が層もしくは平らな層として形成されている、請求項1から3までのいずれか1項に記載のガス拡散層。

【請求項 5】

前記領域(2a, 2b)が不織布、織物、編地、格子または網として形成されている、請求項1から4までのいずれか1項に記載のガス拡散層。

10

20

【請求項 6】

前記第 1 の領域 (2 a) が、炭素繊維を含む不織布として形成されている、請求項 1 から 5 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層。

【請求項 7】

前記不織布が、結合繊維を 30 重量%まで含み、坪量 30 ~ 300 g / m² を有する、請求項 6 に記載のガス拡散層。

【請求項 8】

前記不織布が、流体流によって固化され、カレンダー処理によって圧縮されている、請求項 6 または 7 に記載のガス拡散層。

【請求項 9】

前記不織布が 800 ~ 2500 で炭化されている、請求項 6 から 8 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層。

【請求項 10】

前記第 2 の領域 (2 b) が湿式で製作された不織布を含む、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層。

【請求項 11】

前記被覆体が炭化可能な結合剤を含み、当該結合剤が炭化されている、請求項 1 から 10 のいずれか 1 項に記載のガス拡散層。

【請求項 12】

前記被覆体が樹脂および / または熱可塑性材料を含む、請求項 1 から 11 のいずれか 1 項に記載のガス拡散層。

【請求項 13】

前記第 2 の領域 (2 b) が、ポリビニルアルコール、カーボンブラック、グラファイト、金属、炭素繊維または金属繊維を含む、請求項 1 から 12 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層。

【請求項 14】

曲げ剛性および / または引張係数が、前記第 1 の領域 (2 a) から前記第 2 の領域 (2 b) に向かって連続的に変化する構造を特徴とする、請求項 1 から 13 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層。

【請求項 15】

請求項 1 から 14 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層を 2 つ含む燃料電池であって、隣接するガス拡散層がそれらの第 1 の領域 (2 a) で向かい合わせになっており、第 2 の領域 (2 b) が相互に離反するように配向している、燃料電池。

【請求項 16】

多孔質構造を有する第 1 の領域 (2 a) に、安定化ゾーンとして形成されている第 2 の領域 (2 b) を配設させる、請求項 1 から 14 までのいずれか 1 項に記載のガス拡散層の製造方法。

【請求項 17】

前記領域 (2 a , 2 b) を一緒に炭化または黒鉛化する、請求項 16 に記載の方法。

【請求項 18】

前記領域 (2 a , 2 b) を、押圧 0 . 1 ~ 40 MPa および温度 20 ~ 400 で押し合わせる、請求項 16 または 17 に記載の方法。

【請求項 19】

前記第 1 の領域 (2 a) に固化を施す、請求項 16 から 18 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 20】

少なくとも 1 つの領域 (2 a , 2 b) に段階的な熱処理を 2500 までの温度で施す、請求項 16 から 19 までのいずれか 1 項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

10

20

30

40

50

【 0 0 0 1 】

本発明はガス拡散層に関する。さらに、本発明は2つのガス拡散層を含む装置に関し、最後に、ガス拡散層の製造方法に関する。

【背景技術】

【 0 0 0 2 】

ガス拡散層は、燃料電池で使用されている。燃料電池の従来の構造は、ガス分配構造を備えているバイポーラプレート、ガス拡散層および反応層という層の配列を特徴としている。これら層は接触抵抗を最小にするために圧縮される。許容厚みの影響を受けない均一な圧縮を達成するために、ガス拡散層はできるだけ高い弾性を有することが望ましい。

【 0 0 0 3 】

しかし、弾力のあるガス拡散層は、燃料電池のガス流路に入り込んでしまう。自動車分野における燃料電池のガス分配部では、流路の深さは極めて小さく、幅は比較的広い。流路深さは400 μmより小さく、流路幅は1000 μmより大きい。この寸法は、燃料電池における要求を満たすのに必要なものである。

【 0 0 0 4 】

導管内の圧力降下は線形的ではなく、導管の半径の4乗の逆数に比例する。したがって、流路内にガス拡散層がわずかに入り込んだだけで電池内で大きな圧力降下が生じる。結果として、コンプレッサでの寄生損失により燃料電池の効率が低下してしまう。

【 0 0 0 5 】

さらに、ガス拡散層の、反応層ないしは流路の領域内の膜にかかる押付け圧は低い。その結果、この領域内での接触抵抗が高められ、これにより、電池の効率はさらに低下する。

【 0 0 0 6 】

燃料電池のアノードとカソードとの間での圧力差がある場合、ガス拡散層の撓みも危惧され得る。このような使用には、したがって、ほとんど例外なく、著しく高い引張係数を有する炭素繊維紙が用いられる。しかし、使用されるこの紙は、所定の厚みを超えると巻くことができなくなり、よって、連続的な製造もしくは加工もできなくなる。

【 0 0 0 7 】

このように、従来技術で公知のガス拡散層は多くの面で欠点を有する。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 8 】

したがって、本発明の課題は、燃料電池の問題のない運転を、その効率を最適化すると共に実現するシステムを提供することである。

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 9 】

本発明によれば、上記課題は特許請求項1の特徴によって解決される。

【 0 0 1 0 】

その特徴によれば、ガス拡散層は、相互に作用結合した(wirkverbindend)少なくとも2つの機能的な領域を含み、第1の領域は多孔質構造を有し、第2の領域は安定化ゾーンとして形成されている。

【 0 0 1 1 】

本発明によれば、まず、ガス拡散層がその効果を最大限に発揮するために異なる機能的な領域を有する必要があることが明らかとなった。次に、安定化ゾーンを設けておくことによって、ガス拡散層が圧縮された場合の、燃料電池のガス流路への押込みが阻止されることが明らかとなった。ガス拡散層の接触抵抗を減らすためにガス拡散層に十分に圧力をかけることができることが巧みな手法で保証され、さらに、ガス拡散層がガス流路に押し込まれないことが保証される。よって、本発明によるガス拡散層の構造上の形態が燃料電池の効率を最適化し、かつ燃料電池の問題のない運転が保証される。これにより、冒頭に記載の課題が解決される。

10

20

30

40

50

【 0 0 1 2 】

特に有利には、第1の領域は、第2の領域より高い圧縮率を有してよい。この具体的な形態により、第1の領域が問題なく圧縮可能であり、第2の領域が高められた安定性を有することが保証される。この高められた安定性によって、第2の領域がこれに隣接する空洞に押し込まれないことが保証される。

【 0 0 1 3 】

第1の領域は、第2の領域より高い弾性を有するように構成されていてよい。この具体的な形態によって、第1の領域に押し付けられる不均一部または構造を補償することが可能となる。その限りでは、第1の領域によって特別な気密性が実現できる。

【 0 0 1 4 】

第1の領域は、第2の領域より低い引張係数を有してよい。この形態によって、第1の領域が第2の領域よりも撓みやすいことが保証される。ガス拡散層は、全体で1 G P a未満の曲げの係数(曲げ弾性率)を有することによって特徴付けられていてよい。このような曲げ弾性率を有するガス拡散層は、問題なく巻くことができる。これにより、ガス拡散層を破損してしまうことなくローラに巻くことができるので、ガス拡散層の連続的な製造が可能となる。

【 0 0 1 5 】

これらの領域は、層もしくは平らな層として構成されていてよい。この具体的な形態では、問題なく予製造されかつ異なる加工がなされた層を、相互に結合することができる。その限りでは、各層を様々にかつ互いに別々にパラメータ化することができる。

【 0 0 1 6 】

これらの領域は、不織布、織物、編地、格子または網として構成されていてよい。これらの材料を使用することによって、ガス拡散層に特別な安定性が付与される。さらに、これらの材料は問題なく市場で入手可能なものであり、よって、ガス拡散層の製造が問題なく実現できる。

【 0 0 1 7 】

第1の領域は、炭素繊維を含む不織布として構成されていてよい。その場合、この第1の領域を炭素繊維素材もしくは炭素素材を含む多孔質の不織布として構成することができる。第1の領域を織物、編地、格子または網として構成することもできる。炭素繊維の使用によって、第1の領域に特別な導電性が付与される。

【 0 0 1 8 】

上記不織布は、結合繊維(Bindefaser)を30重量%まで含み、 $30 \sim 300 \text{ g/m}^2$ の坪量を有してよい。結合繊維の使用が30重量%までであるので、前記のそれぞれの領域の所望の機能を有する物理的特性および化学的特性が過度の影響を受けないことが保証される。この選択された坪量によって不織布の機械的な固化(Verfestigung)が可能となる。その場合、不織布を高圧流体噴射によって圧力100~300バールで機械的に固化することができる。

【 0 0 1 9 】

不織布は、流体噴射によって固化もしくはボンディングされ、カレンダー処理によって圧縮されていてよい。この手段によって、不織布の安定性が特に高められる。さらに、カレンダー処理によって、不織布に構造を刻印するかまたは不織布を寸法決めすることができる。

【 0 0 2 0 】

不織布は、800~2500 で炭化されていてよい。不織布の炭化によって、さらなる固化が保証される。さらに、この炭化によって不織布の導電性を高めることができる。

【 0 0 2 1 】

第2の領域は、湿式不織布を含んでいてよい。また、この領域は導電性であってもよい。この領域は、ガス拡散層全体の安定化に特に寄与するものであって、それ以上の役割を果たさなくともよい。この領域は、炭素繊維を含んでいてよい。炭素繊維の使用によって、第2の領域を導電性に構成することができる。

10

20

30

40

50

【 0 0 2 2 】

第2の領域は、被覆体として構成することができる。被覆もしくはコーティングという手法によって、第2の領域を特に薄く構成することができる。その限りでは、ガス拡散層全体の特にコンパクトな構造を実現できる。

【 0 0 2 3 】

被覆体は、炭化可能な結合剤 (karbonisierfaehiges Bindemittel) を含んでいてよい。炭化可能な結合剤の使用によって、ガス拡散層の安定化が可能となる。

【 0 0 2 4 】

被覆体は、坪量 $1 \sim 100 \text{ g/m}^2$ であってよい。この範囲からの坪量を選択することによって、ガス拡散層の十分な安定化が保証される。特に、ガス拡散層を破損させずに問題なく巻くことができることが保証される。被覆体は、樹脂および/または熱可塑性材料を含んでいてよい。これらの材料は、流通している大抵の繊維材料と結合するので、これらの材料を選択することによって問題のない加工性が保証される。特に、被覆体を、第1の領域の表面の最大10%が覆われるように薄く塗布することが可能となる。炭化可能な結合剤としては、コールタール、石油、木材もしくはこれらの混合物からのピッチもしくはタール、フェノール樹脂、フラン樹脂、エポキシ樹脂、ポリスチレン、ポリアクリレート、アクリロニトリルブタジエン、スチレンターポリマー、メラミン樹脂、ヘキサメチレンテトラアミン含有フェノールノボラック、フェノール-エポキシ樹脂前縮合物、記載の化合物のコポリマー、改質ポリマーまたは混合物であってよい。糖類、例えば家庭用砂糖のような単糖類も適する。これらの結合剤は全て、特に適切な加工性によって特徴付けられる。炭化できない結合剤であってよい。例えば、特に疎水性の特性によって特徴付けられるポリテトラフルオロエチレンであってよい。

【 0 0 2 5 】

第2の領域は、ポリビニルアルコール、カーボンブラック、グラファイト、金属、炭素繊維または金属繊維を含んでいてよい。特に、被覆体として形成されたこれらの混入物を第2の領域に加えることができる。ポリビニルアルコールを使用することによって、第2の領域の多孔率の調整が可能となる。カーボンブラック、グラファイトまたは金属の混入によって、第2の領域の導電性を高めることができる。強度の向上は、炭素繊維または金属繊維の混入によって達成することができる。

【 0 0 2 6 】

ガス拡散層が漸増的な構造を有することは好ましい。漸増的な構造とは、勾配であると説明できる。特に、ガス拡散層が、曲げ剛性、引張係数または他の機械的性質に関する種々の空間方向 (空間における方向) での勾配によって特徴付けられる均一な金属からなっていてよい。このことを基本として、例えば、圧縮率を、第1の領域から第2の領域に向かって連続的に減少させることができる。このような連続的な減少は、全ての機械的性質に関して、全ての空間方向で可能である。よって、ガス拡散層を、予め設定された空間的な条件に適合させることができる。

【 0 0 2 7 】

冒頭に記載の課題は、さらに、特許請求項19の特徴によって解決される。その特徴によれば、装置には、冒頭に記載したような2つのガス拡散層が含まれ、これらのガス拡散層はその第1の領域で向き合っており、その第2の領域は互いに離れるように配向している。

【 0 0 2 8 】

反復を避けるため、本発明の機能に関しては、ガス拡散層自体の実施形態を参照されたい。本発明による装置は、特に、このような層の組の配置で構成した場合の曲げ弾性率が、第2の領域を向かい合わせて配置させたものより、少なくとも25%高いことを特徴としている。

【 0 0 2 9 】

しかし、上記ガス拡散層を使用した燃料電池に対する要求に完全に応じて、2つのガス拡散層の第2の領域を向かい合わせて配置させた装置を提供することもできる。

10

20

30

40

50

【0030】

さらに、冒頭に記載の課題は、請求項20の特徴を有する前記ガス拡散層の製造方法によって解決される。この特徴によれば、多孔質構造を有する第1の領域に、安定化ゾーンとして構成される第2の領域を配設する。

【0031】

反復を避けるため、本発明の機能に関しては、ガス拡散層自体の実施形態を参照されたい。

【0032】

有利には、上記領域と一緒に炭化または黒鉛化することができる。この形態によって、ガス拡散層全体の特に均一な構造が可能となる。特に、この方法ステップによって、両領域に同じ製造履歴を持たせることが可能となり、これにより、両領域の材料特性が均一となる。

10

【0033】

これらの両領域は、押圧0.1~40MPaおよび温度20~400で押し合わせることができる。この方法段階を、適当な結合剤を使用して行うこともできる。結合剤の使用によって、2つの領域の固い結合が保証される。この方法ステップは、さらに、特定の圧力条件および温度条件下での積層ステップを含んでよい。このような積層のステップによって、ガス拡散層の選択的な圧力の負荷が可能となる。さらに、ガス拡散層に構造を刻印することもできる。

【0034】

20

第1の領域に固化を施してもよい。この場合、第1の領域に機械的な固化を施すことができる。このことを基本として、繊維ウェブとして形成された第1の領域を高圧流体流によって固化することができる。高圧流体流を用いた処理により繊維が混ぜ合わされもしくは掻き回され(verwirbelt)かつ絡み合わされる。この処理後、繊維の一部は、z方向、つまり不織布の厚み方向の配向を有する。場合によっては、固化された不織布は、機械的な圧縮によって該不織布の初期厚みの30~90%に圧縮されている。

【0035】

第1の領域には、段階的な熱処理をまず1500までの温度で、次に2500までの温度で施すことができる。この方法ステップによって、第1の領域の炭化または黒鉛化を複数のステップで行うことができる。

30

【0036】

全ての方法ステップは複数回繰り返すことができ、その限りでは、技術的意義があれば任意の順序で実施することができる。

【0037】

本発明の教示を有利に構成して発展させるための種々の手段がある。これについて、一方では、添付の特許請求の範囲に記載の請求項を、他方では、図面に基づいた本発明の有利な実施例についての以下の説明を参照されたい。本発明の有利な実施例の説明に関連して、上記教示の有利な形態および発展形も総括的に説明する。

【発明を実施するための最良の形態】

【0038】

40

唯一の図面に、燃料電池における装置を示す。ガス分配部1の間にガス拡散層2が配置されている。このガス拡散層2は、相互に作用結合した2つの機能的な領域2aおよび2bを含む。第1の領域2aは、多孔質構造として形成されている。第2の領域2bは、安定化ゾーンとして形成されている。ガス拡散層2には電極3が接続されており、この電極3は膜4と接続されている。この装置の構造は膜4に対して対称となっている。

【0039】

このようなガス拡散層の可能な形態について、2つの実施例を以下に記載する。

【0040】

実施例1

2層のガス拡散層を以下のように製造した。

50

【0041】

まず、巻縮させ酸化させたポリアクリロニトリル繊維をカーディングし、積層させてウェブにすることによって、第1の層を製造した。次に、この層を150バールの圧力で高圧流体水流（Hochdruckfluidwasserstrahlen）によって掻き回し、固化させた。続いて、この層を120 で乾燥させた。さらに、この第1の層を温度320 でカレンダーを用いて0.2mmの厚みにプレスした。続いて、この第1の層の炭化を温度1400 で窒素雰囲気下で行なった。このようにして製造した第1の層は、坪量65g/m²を有していた。

【0042】

第2の層には、市販の炭素繊維紙を用いた。この炭素繊維紙は、商品名TGPH 30 で日本の東レ株式会社により製造されているものである。これら2つの層を、燃料電池に組み込む際に重ね合せ、圧縮した。この場合、第1の層は燃料電池の膜の方を向いている。

10

【0043】

実施例2

実施例2では、その第1の層を実施例1の第1の層と同様にして製造したガス拡散層を開示する。第1の層は、実施例1の第1の層とは坪量が異なっているだけである。実施例2による第1の層の坪量は、100g/m²である。被覆体が第2の層の役割を果たしている。この被覆体は、坪量25g/m²を有し、カーボンブラック80%およびフェノール樹脂（ドイツBakelite社、型番9282 FP）20%からなる。この被覆体は点状であり、その点は0.5mmより小さい直径を有する。この被覆体によって、第1の層の片側の27%の面被覆が得られた。被覆体は、スクリーン印刷によって第1の層に塗布した。スクリーン印刷には、固形分、つまりカーボンブラックおよびフェノール樹脂20%および水80%からなるペーストを使用した。スクリーン印刷によるペーストの塗布後、温度120 で乾燥を行ない、それにより水分を蒸発させた。温度200 での熱処理過程によってフェノール樹脂を完全に反応させた。この製造ステップに続いて、化合物の炭化を窒素雰囲気下で1400 で行なった。

20

【0044】

本発明による教示のさらなる有利な形態および発展形については、一方では本明細書の総説部分を、他方では添付の特許請求の範囲を参照されたい。最後に、上述の単に任意に選択された実施例が本発明による教示を説明するためだけに用いられていること、本発明による教示がこの実施例に限定されないことを特に強調しておく。

30

【図面の簡単な説明】

【0045】

【図1】多孔質構造および安定化ゾーンを有するガス拡散層を含む、燃料電池内の装置を示す。

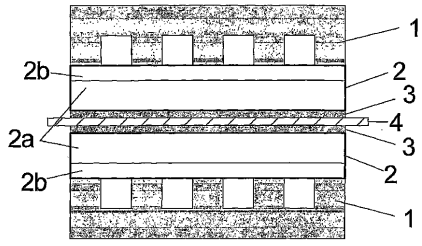


Fig.

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
H 0 1 M 4/96 B

- (72)発明者 ヘルムボルト, アクセル
ドイツ国65719ホーフハイム, ベルクヴェーク・7
- (72)発明者 サラマ, カリム
ドイツ国69469ヴァンイハイム, ヴァイトアレー・19
- (72)発明者 リーベル, デニス
フランス国67850エリシエム, リュ・ドゥ・ウブロン, 2
- (72)発明者 ヴァグナー, クラウス - ディートマー
ドイツ国68542ヘデスハム, ヴェステントシュトラッセ・42
- (72)発明者 ボック, アヒム
ドイツ国69469ヴァンイハイム, フランケンガッセ・1 - 2
- (72)発明者 ヴァグナー, ジルケ
ドイツ国64285ダルムシュタット, ニーダーシュトラッセ・1

審査官 山内 達人

- (56)参考文献 特開2000 - 058073 (JP, A)
特表2001 - 514785 (JP, A)
国際公開第02 / 023655 (WO, A1)
米国特許出願公開第2005 / 0026012 (US, A1)
国際公開第2004 / 031465 (WO, A1)
特開2003 - 173789 (JP, A)
宮川行雄等, PTFE複合材料とMoS₂被膜の組合せ潤滑効果(第4報), トライボロジスト
, 1992年, 第37巻 第5号, p. 413 - 420

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
H 0 1 M 4 / 8 6 - 4 / 9 6
H 0 1 M 8 / 0 0 - 8 / 2 4